

日 本 国 特 許 庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

ISHIKAWA
Appn No. 09/729,195
Filed 12/5/00
Q62115
2 of 4

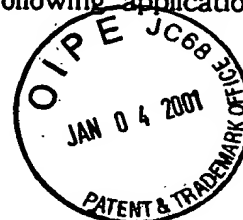
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1999年12月15日



出 願 番 号

Application Number:

平成11年特許願第356686号

出 願 人

Applicant(s):

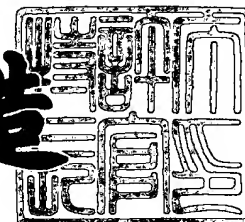
日本電気株式会社

RECEIVED
FEB 13 2001
TC 1700

2000年 9月22日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3078343

【書類名】 特許願

【整理番号】 34601502

【提出日】 平成11年12月15日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H05B 33/14
H05B 33/22
C09K 11/06

【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

【請求項の数】 4

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 石川 仁志

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 東口 達

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 多田 宏

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 森岡 由紀子

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 小田 敦

【特許出願人】

 【識別番号】 000004237

 【氏名又は名称】 日本電気株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100108578

【弁理士】

【氏名又は名称】 高橋 詔男

【代理人】

【識別番号】 100064908

【弁理士】

【氏名又は名称】 志賀 正武

【選任した代理人】

【識別番号】 100101465

【弁理士】

【氏名又は名称】 青山 正和

【選任した代理人】

【識別番号】 100108453

【弁理士】

【氏名又は名称】 村山 靖彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008707

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9709418

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

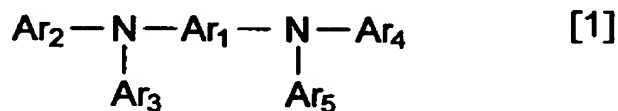
【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 陽極と陰極との間に一層または複数層の有機薄膜層を有し、この有機薄膜層が少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、

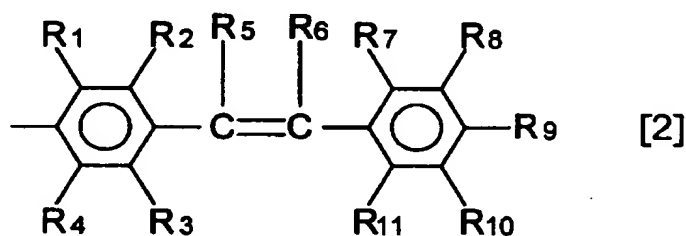
前記発光層が下記一般式〔1〕で表される化合物を単独もしくは混合物として含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 1】



(式〔1〕中、 Ar_1 は炭素数 5～42 の置換もしくは無置換のアリーレン基であり、 $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ はそれぞれ独立に炭素数 6～20 の置換もしくは無置換のアリール基であり、 $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ のうち少なくとも一つは下記一般式〔2〕で表されるスチリル基を有し、これとは独立して $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ のうち少なくとも一つは炭素数 2 以上の置換もしくは無置換の飽和炭化水素基を有する。また、 Ar_2 と Ar_3 、 Ar_4 と Ar_5 は互いに環を形成してもよい。)

【化 2】



(式〔2〕中、 $\text{R}_1 \sim \text{R}_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換

のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシ基を表し、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれらのうちの2つで環を形成してもよい。)

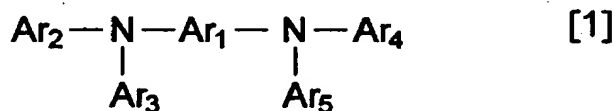
【請求項2】 前記有機薄膜層が少なくとも正孔輸送層を有し、この正孔輸送層が前記一般式〔1〕で表される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 前記有機薄膜層が少なくとも電子輸送層を有し、この電子輸送層が前記一般式〔1〕で表される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 少なくとも陽極、発光帯域、陰極を構成要素として持ち、発光帯域が一層または複数層の有機薄膜層から形成される有機エレクトロルミネッセンス素子において、

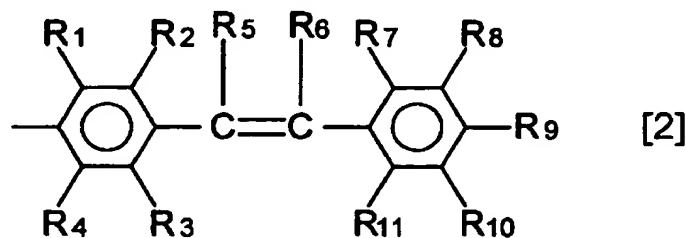
前記発光帯域が陽極に隣接し、前記発光帯域を形成する有機薄膜層のうちの陽極に接する層が、下記一般式〔1〕で示される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化3】



(式〔1〕中、 Ar_1 は炭素数5～42の置換もしくは無置換のアリーレン基であり、 $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ はそれぞれ独立に炭素数6～20の置換もしくは無置換のアリール基であり、 $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ のうち少なくとも一つは下記一般式〔2〕で表されるスチリル基を有し、これとは独立して $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ のうち少なくとも一つは炭素数2以上の置換もしくは無置換の飽和炭化水素基を有する。また、 Ar_2 と Ar_3 、 Ar_4 と Ar_5 は互いに環を形成してもよい。)

【化 4】



(式 [2] 中、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシ基を表し、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれらのうちの 2 つで環を形成してもよい。)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、発光特性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【0002】

【従来の技術】

有機エレクトロルミネッセンス (EL) 素子は、電界を印加することにより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子との再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。

イーストマン・コダック社の C. W. Tang らによって積層型素子による低電圧駆動有機 EL 素子の報告 (C.W.Tang, S.A.VanSlyke, Applied Physics Letters, 51 巻, 913 頁, 1987 年など) がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機 EL 素子に関する研究が盛んに行われている。Tang らは、トリス (8-ヒドロキシキノリノールアルミニウム) を発光層に、トリフェニルジア

ミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じこめることなどが挙げられる。

この例のように有機EL素子の素子構造としては、正孔輸送（注入）層、電子輸送性発光層の2層型、または正孔輸送（注入）層、発光層、電子輸送（注入）層の3層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では、注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。材料に関しても様々な化合物が有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として開発されている。

【0003】

正孔輸送性材料としてはスターバースト分子である4, 4', 4"-トリス（3-メチルフェニルフェニルアミノ）トリフェニルアミンやN, N'-ジフェニル-N, N'-ビス（3-メチルフェニル）-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン等のトリフェニルアミン誘導体や芳香族ジアミン誘導体がよく知られている（例えば、特開平8-20771号公報、特開平8-40995号公報、特開平8-40997号公報、公報特開平8-53397号公報、特開平8-87122号公報等）。

電子輸送性材料としてはオキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体等がよく知られている。

また、発光材料としてはトリス（8-キノリノラート）アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ビススチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られ、それらの発光色も青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている（例えば、特開平8-239655号公報、特開平7-138561号公報、特開平3-200289号公報等）。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記化合物の他に有機エレクトロルミネッセンス素子の構成材

料としてスチリル基を有するジフェニルアミノアリーレンが有用であることが開示されている（特開平 11-74079 号公報、特開平 11-185961 号公報等）が、特定の化合物においては、分子間の相互作用による濃度消光が起こり発光輝度の低下など EL 特性の低下が起こることが明らかとなった。

【0005】

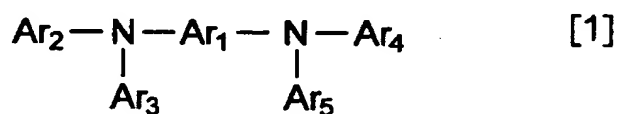
【課題を解決するための手段】

本発明者らは前記課題を解決するために鋭意検討した結果、特定のジアリールアミノ基、具体的には炭素数 2 以上の飽和炭化水素基を有するビス（ジアリールアミノ）アリーレン化合物がアルキル基の導入により上記相互作用を阻害し濃度消光が起こらず EL 発光特性が向上することを見出した。

従って本発明は下記①～④の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するものである。

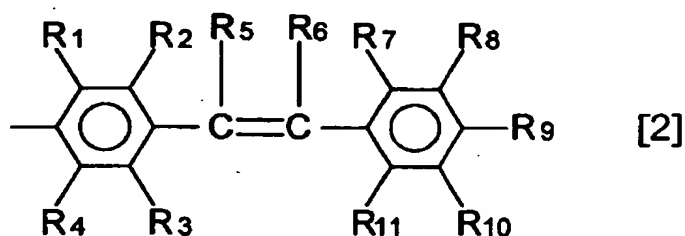
①陽極と陰極との間に一層または複数層の有機薄膜層を有し、この有機薄膜層が少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層が下記一般式〔1〕で表される化合物を単独もしくは混合物として含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 5】



（式〔1〕中、 Ar_1 は炭素数 5～42 の置換もしくは無置換のアリーレン基であり、 $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ はそれぞれ独立に炭素数 6～20 の置換もしくは無置換のアリール基であり、 $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ のうち少なくとも一つは下記一般式〔2〕で表されるスチリル基を有し、これとは独立して $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ のうち少なくとも一つは炭素数 2 以上の置換もしくは無置換の飽和炭化水素基を有する。また、 Ar_2 と Ar_3 、 Ar_4 と Ar_5 は互いに環を形成してもよい。）

【化 6】



(式 [2] 中、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシ基を表し、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれらのうちの 2 つで環を形成してもよい。)

②前記有機薄膜層が少なくとも正孔輸送層を有し、この正孔輸送層が前記一般式 [1] で表される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする①の有機エレクトロルミネッセンス素子。

③前記有機薄膜層が少なくとも電子輸送層を有し、この電子輸送層が前記一般式 [1] で表される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする①の有機エレクトロルミネッセンス素子。

④少なくとも陽極、発光帯域、陰極を構成要素として持ち、発光帯域が一層または複数層の有機薄膜層から形成される有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光帯域が陽極に隣接し、前記発光帯域を形成する有機薄膜層のうちの陽極に接する層が、前記一般式 [1] で示される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0 0 0 6】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明で用いられる化合物は、一般式 [1] で表される構造を有する化合物であり、 $Ar_2 \sim Ar_5$ のうち少なくとも一つは一般式 [2] で表されるスチリル基を有し、これとは独立して $Ar_2 \sim Ar_5$ のうち少なくとも一つは炭素数 2 以上の置換もしくは無置換の飽和炭化水素基を有する。上記一般式 [1] において、 Ar_1 に用いられる化合物は炭素数 5 ~ 42 の置換もしくは無置換のアリーレン基を示す。

このような化合物の例としては、ナフチル基、アントラニル基、ペリレニレン基、1 : 2 ベンゾペリレニレン基、1 : 2 : 7 : 8 ジベンゾペリレニレン基、1 : 2 : 11 : 12 ジベンゾペリレニレン基、テリレニレン基、ペンタセニレン基、ビスアンスレニレン基、10, 10' - (9, 9' - ビアンスリル) イレン基、4, 4' - (1, 1' - ビナフチル) イレン基、4, 10' - (1, 9' - ナフチルアンスリル) イレン基、一般式 [3] で表される 2 価基、

【化 7】



(ただし式 [3] 中、 $Ar_6 \sim Ar_8$ はそれぞれナフチル基またはアントラニル基のいずれかである。) およびフェナントレン、ピレン、ビフェニル、ターフェニル等の芳香族炭化水素あるいは縮合多環式炭化水素、カルバゾール、ピロール、チオフェン、フラン、イミダゾール、ピラゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、フラザン、チアンスレン、イソベンゾフラン、フェノキサジン、インドリジン、インドール、イソインドール、1H-インダゾール、プリン、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、カルバゾール、 β -カルバゾリン、フェナンスリジン、アクリジン、ペリミジン、フェナントロリン、フェナジン、フェノチアジン、フェノキサジン等の複素環化合物あるいは縮合複素環化合物の水素原子を 2 個除いた二価の基およびそれらの誘導体が挙げられる。

【0007】

$Ar_2 \sim Ar_5$ は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 20 のアリール基で、 $Ar_2 \sim Ar_5$ のうち少なくとも一つは上記一般式〔2〕で表されるスチリル基を有する。

炭素数 6 ～ 20 のアリール基の例としては、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ナфтаセニル基、ピレニル基等が挙げられる。

ここに置換基の例として、置換もしくは無置換のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブromo-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

【0008】

置換もしくは無置換のアルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1, 1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3, 3-ジフェニルアリル基、1, 2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられる。置換もしくは無置換のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基等が挙げられる。置換もしくは無置換のアルコキシ基は、 $-OY$ で表される基であり、Yとしては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1

、2-ジシアノエチル基、1,3-ジシアノイソプロピル基、2,3-ジシアノ-
-t-ブチル基、1,2,3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニ
トロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1,2-ジニ
トロエチル基、1,3-ジニトロイソプロピル基、2,3-ジニトロ-t-ブチル
基、1,2,3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

【0009】

置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基の例としては、フェニル基、1-ナフ
チル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリ
ル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、
4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフ
タセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレ
ニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基
、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフ
ェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-
イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-ト
リル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基
、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-
アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-t-ブチル-p-ターフェ
ニル-4-イル基等が挙げられる。

【0010】

また、置換もしくは無置換の芳香族複素環基としては1-ピロリル基、2-ピ
ロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル
基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル
基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル
基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4
-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソ
インドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベン
ゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラ
ニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフ

ラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、

【0 0 1 1】

1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、

2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、

【0012】

1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-*t*-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-*t*-ブチル1-インドリル基、4-*t*-ブチル1-インドリル基、2-*t*-ブチル3-インドリル基、4-*t*-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。

【0013】

置換もしくは無置換のアラルキル基としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-*t*-ブチル基、 α -ナフチルメチル基、1- α -ナフチルエチル基、2- α -ナフチルエチル基、1- α -ナフチルイソプロピル基、2- α -ナフチルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、1- β -ナフチルエチル基、2- β -ナフチルエチル基、1- β -ナフチルイソプロピル基、2- β -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、*p*-メチルベンジル基、*m*-メチルベンジル基、*o*-メチルベンジル基、*p*-クロロベンジル基、*m*-クロロベンジル基、*o*-クロロベンジル基、*p*-ブロモベンジル基、*m*-ブロモベンジル基、*o*-ブロモベンジル基、*p*-ヨードベンジル基、*m*-ヨードベンジル基、*o*-ヨードベンジル基、*p*-ヒドロキシベンジル基、*m*-ヒドロキシベンジル基、*o*-ヒドロキシベンジル基、*p*-アミノベンジル基、*m*-アミノベンジル基、*o*-アミノベンジル基、*p*-ニトロベンジル基、*m*-ニトロベンジル基、*o*-ニトロベンジル基、*p*-シアノベンジル基、*m*-シアノベンジル基、*o*-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

【0014】

置換もしくは無置換のアリールオキシ基は、-OZと表され、Zとしてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、*p*-ターフェニル-4-イル基、*p*-ターフェニル-3-イル基、*p*-ターフェニル-2-イル基、*m*-ターフェニル-4-イル基、*m*-ターフェニル-3-イル基、*m*-ターフェニル-2-イル基、*o*-トリル基、*m*-トリル基、*p*-トリル基、*p*-*t*-ブチルフェニル基、*p*-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、

4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、

【0015】

1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-

-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1
 , 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル
 基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-
 イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-
 6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリ
 ン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナ
 ンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10
 -フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、
 2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル
 基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-
 イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-
 7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリ
 ン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナン
 スロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェ
 ナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-
 フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2,
 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基
 、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イ
 ル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6
 -イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン
 -9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、

【0016】

1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フ
 エノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フ
 エノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フ
 エノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリ
 ル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、
 2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチ
 ルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロー

ル-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-*t*-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-*t*-ブチル-1-インドリル基、4-*t*-ブチル-1-インドリル基、2-*t*-ブチル-3-インドリル基、4-*t*-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

【0017】

置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基は-COOYと表され、Yとしてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブromo-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-

ジシアノ α -ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ α -ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

【0018】

また、環を形成する2価基の例としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアミノ基は $-NX_1X_2$ と表され、 X_1 、 X_2 としてはそれぞれ独立に、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 s -ブチル基、イソブチル基、 t -ブチル基、 n -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 n -オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ α -ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ α -ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ α -ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード α -ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ α -ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソ

プロピル基、2,3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1,2-ジニトロエチル基、1,3-ジニトロイソプロピル基、2,3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

【0019】

炭素数2以上の置換もしくは無置換の飽和炭化水素基は、メチル基を除く上記置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基が挙げられる。

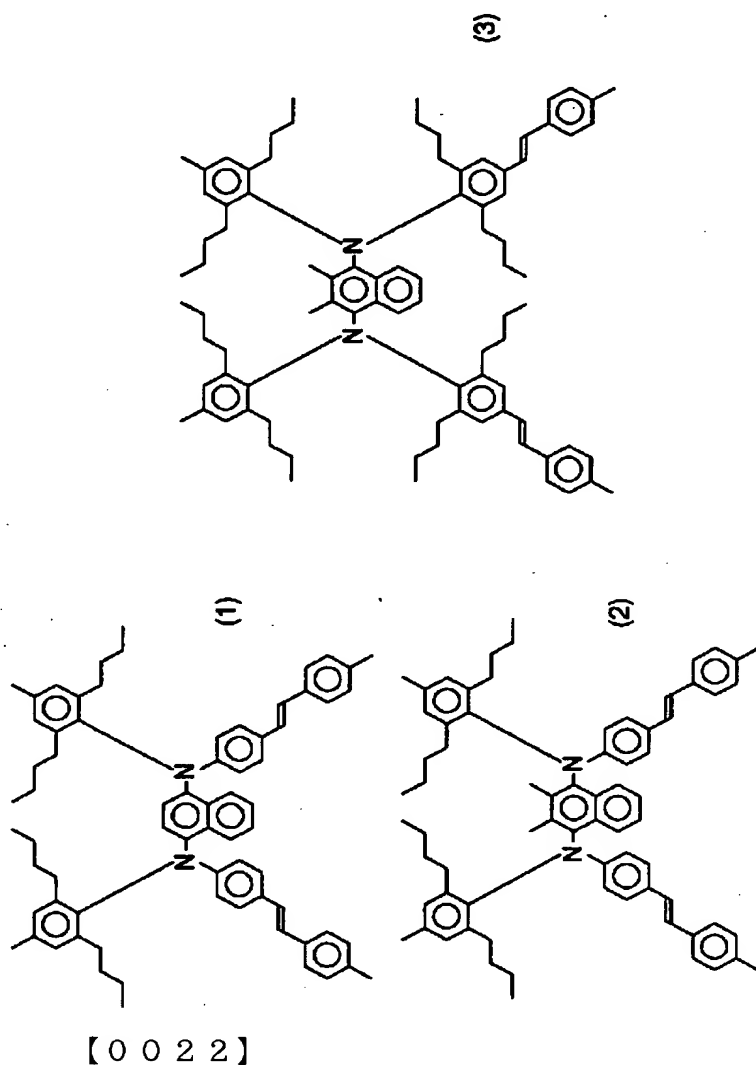
また、 $R_1 \sim R_{11}$ であらわされる置換基の例としては上記置換基が挙げられる。

【0020】

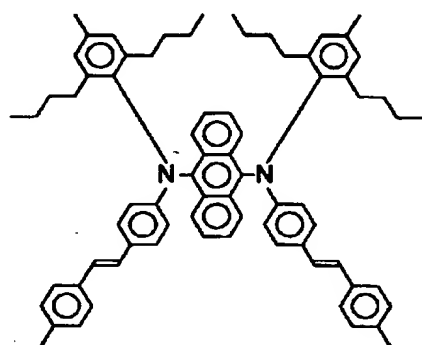
以下に本発明で用いられる一般式〔1〕で表される化合物例として、化合物(1)～(12)を挙げるが、本発明はその要旨を越えない限りこれらに限定されるものではない。

【0021】

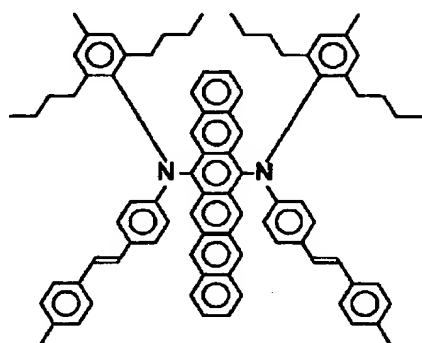
【化 8】



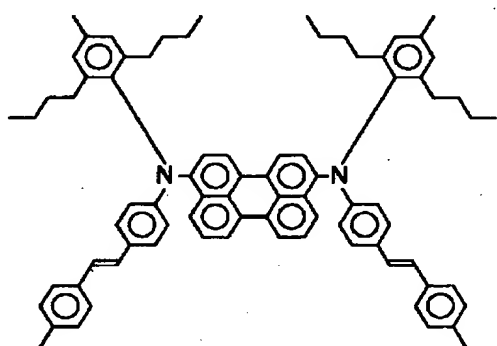
【化 9】



(4)



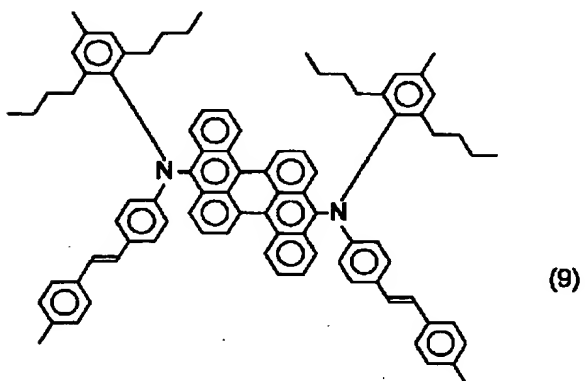
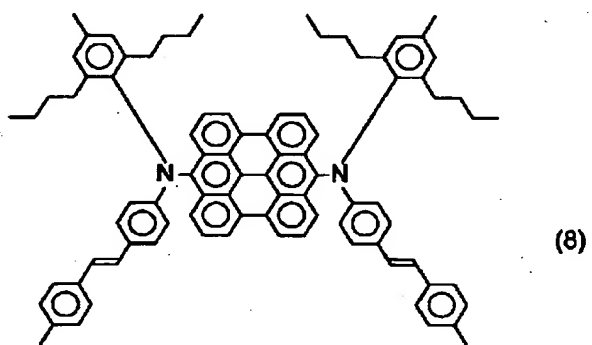
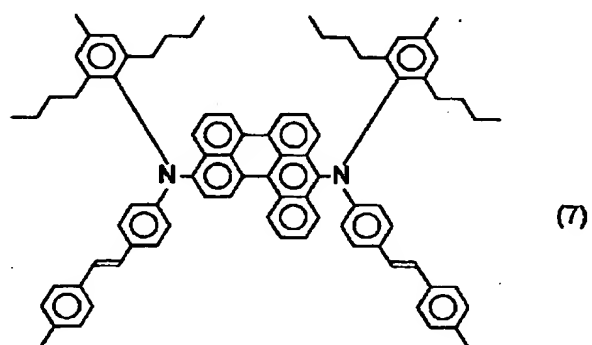
(5)



(6)

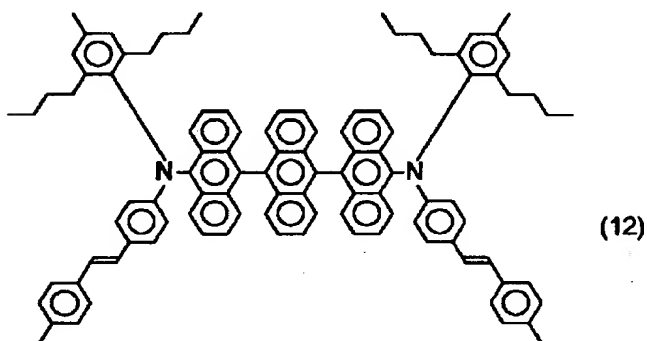
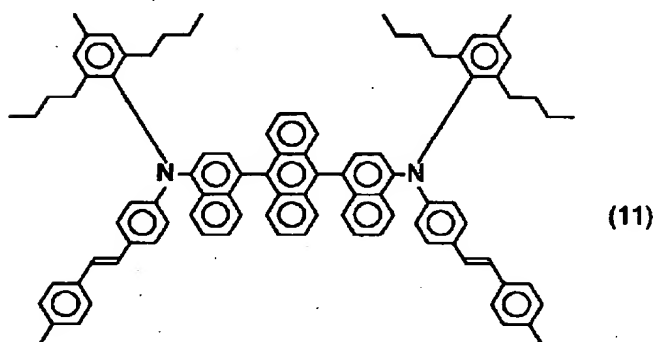
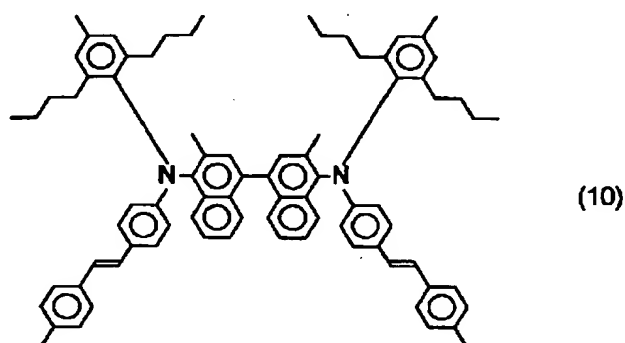
【0 0 2 3】

【化 1 0】



【0 0 2 4】

【化 1 1】



【0 0 2 5】

本発明の有機EL素子の素子構造は、電極間に有機薄膜層を1層あるいは2層以上積層した構造であり、その例として、図1に示すような①陽極、発光層、陰極、図2に示すような②陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極、図3に示すような③陽極、正孔輸送層、発光層、陰極、あるいは図4に示すような④陽極、発光層、電子輸送層、陰極等の構造が挙げられる。

本発明で用いられる一般式〔1〕で表される化合物は、上記のどの有機薄膜層に用いられてもよく、他の正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料にドーブさせることも可能である。

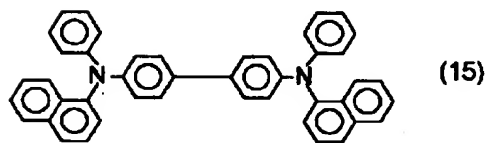
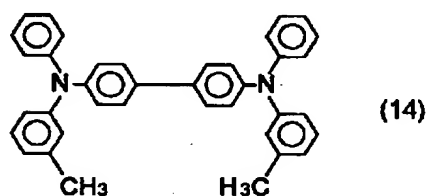
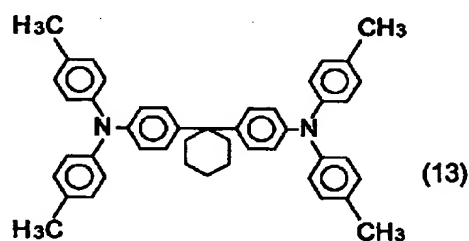
【0026】

本発明に用いられる正孔輸送材料は特に限定されず、通常正孔輸送剤として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。

例えば、下記のビス（ジ（p-トリル）アミノフェニル）-1, 1-シクロヘキサン（13）、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス（3-メチルフェニル）-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン（14）、N, N'-ジフェニル-N-N'-ビス（1-ナフチル）-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン（15）等のトリフェニルジアミン類や、スターバースト型分子（（16）～（18）等）等が挙げられる。

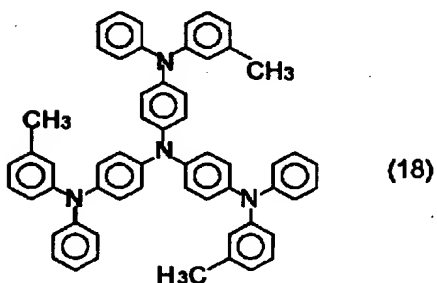
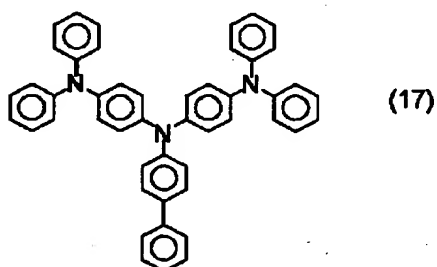
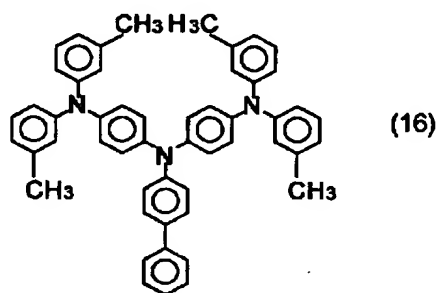
【0027】

【化12】



【0028】

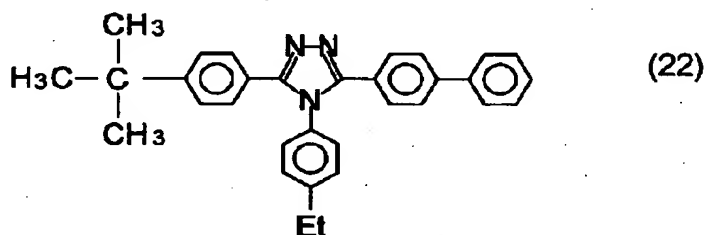
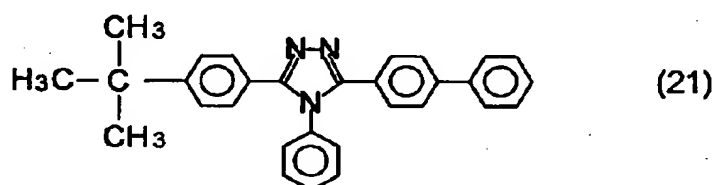
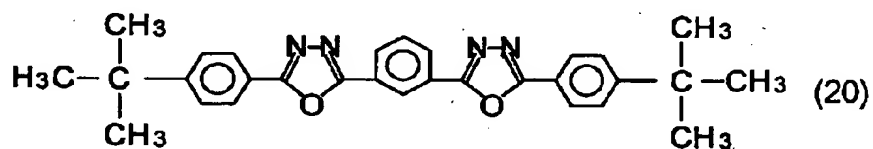
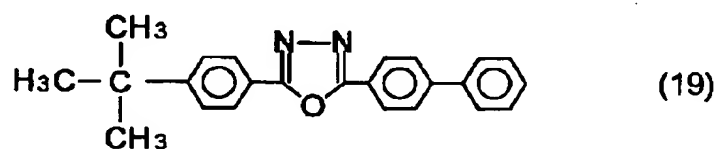
【化 1 3】



【0 0 2 9】

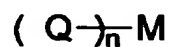
本発明に用いられる電子輸送材料は特に限定されず、通常電子輸送材として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。例えば、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(19)、ビス{2-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール}-m-フェニレン(20)、等のオキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体((21)、(22)等)、が挙げられる。

【化 1 4】



また一般式 [4]、[5]、[6] に示される様なキノリノール系の金属錯体も挙げられる。

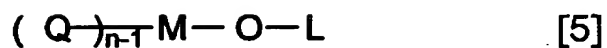
【化 1 5】



[4]

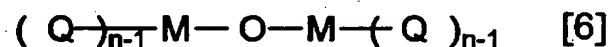
(ただし式 [4] 中、Qは置換または未置換のヒドロキシキノリン誘導体、置換もしくは未置換のベンゾキノリン誘導体でMは金属原子、nはその価数を表す)

【化 1 6】



(ただし式 [5] 中、Q は置換または未置換のヒドロキシキノリン誘導体、置換もしくは未置換のベンゾキノリン誘導体を表し、L はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のシクロアルキル基、置換もしくは未置換の窒素原子を含んでもよいアリール基を表し、M は金属原子、n はその価数を表す)。

【化 1 7】

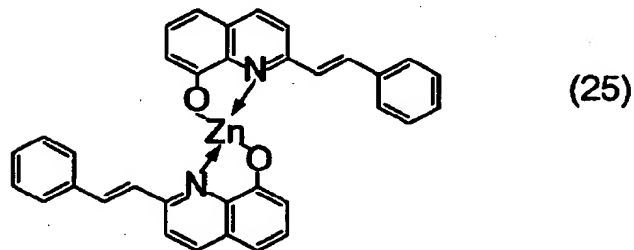
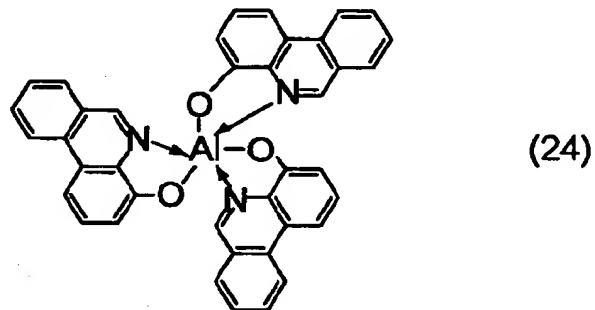
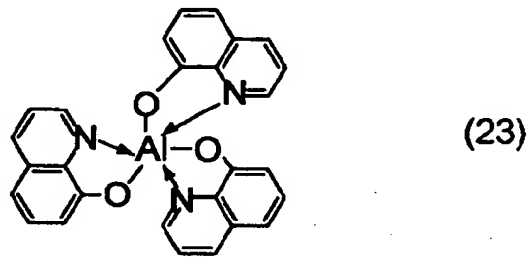


(ただし式 [6] 中、Q は置換または未置換のヒドロキシキノリン誘導体、置換もしくは未置換のベンゾキノリン誘導体を表し、M は金属原子、n はその価数を表す)。

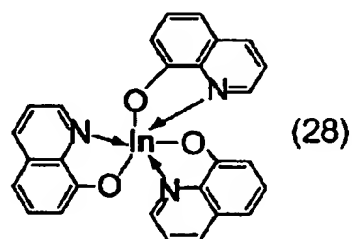
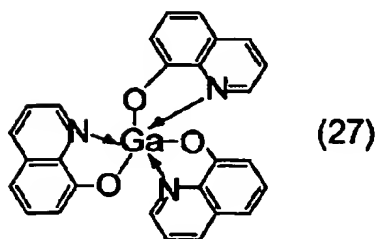
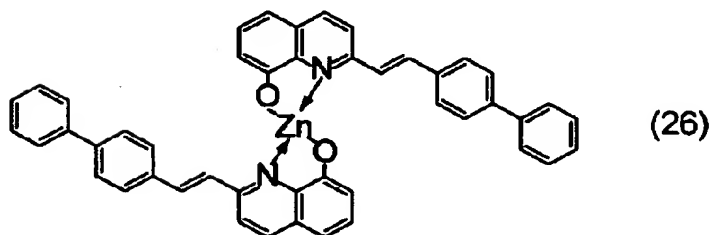
【0 0 3 0】

一般式 [4] の具体例としては (2 3) ~ (2 8) の化合物が挙げられる。

【化 18】



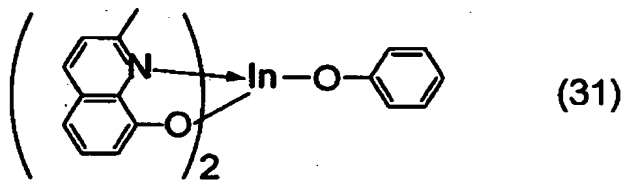
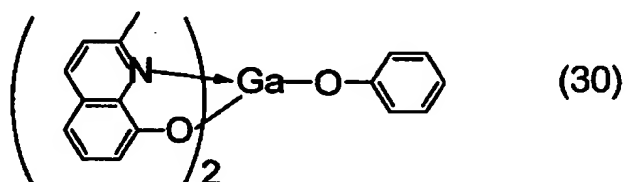
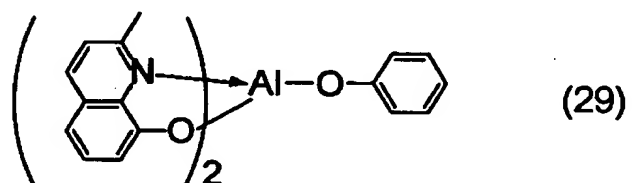
【化 19】



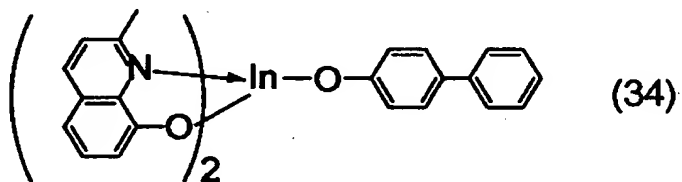
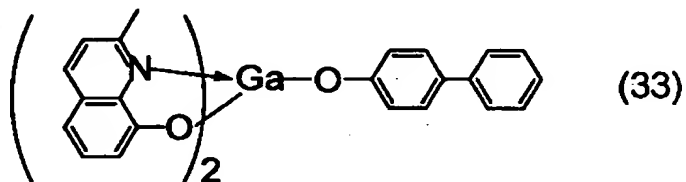
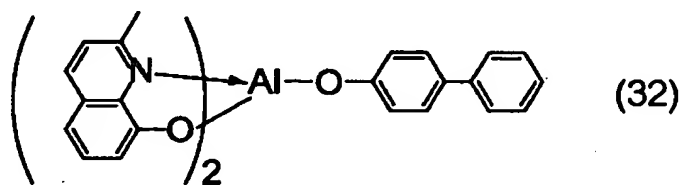
【 0 0 3 1 】

同様に一般式 [5] の具体例としては次の (2 9) ~ (3 4) が挙げられる。

【 化 2 0 】



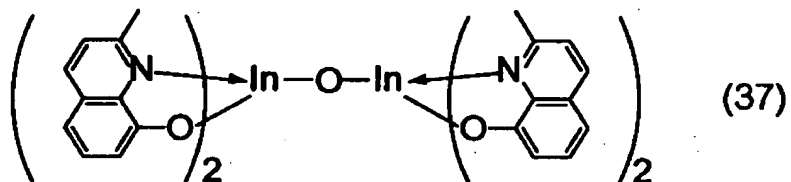
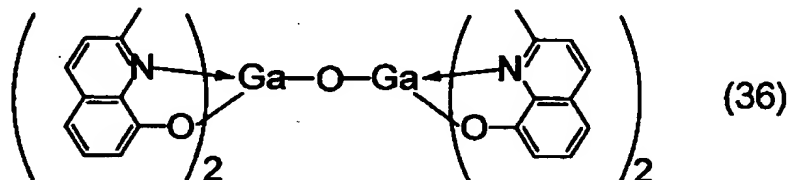
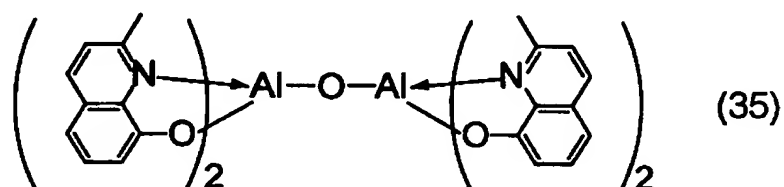
【化 2 1】



【0 0 3 2】

また、一般式〔6〕の具体的な化合物としては（35）～（37）が挙げられる。

【化 2 2】

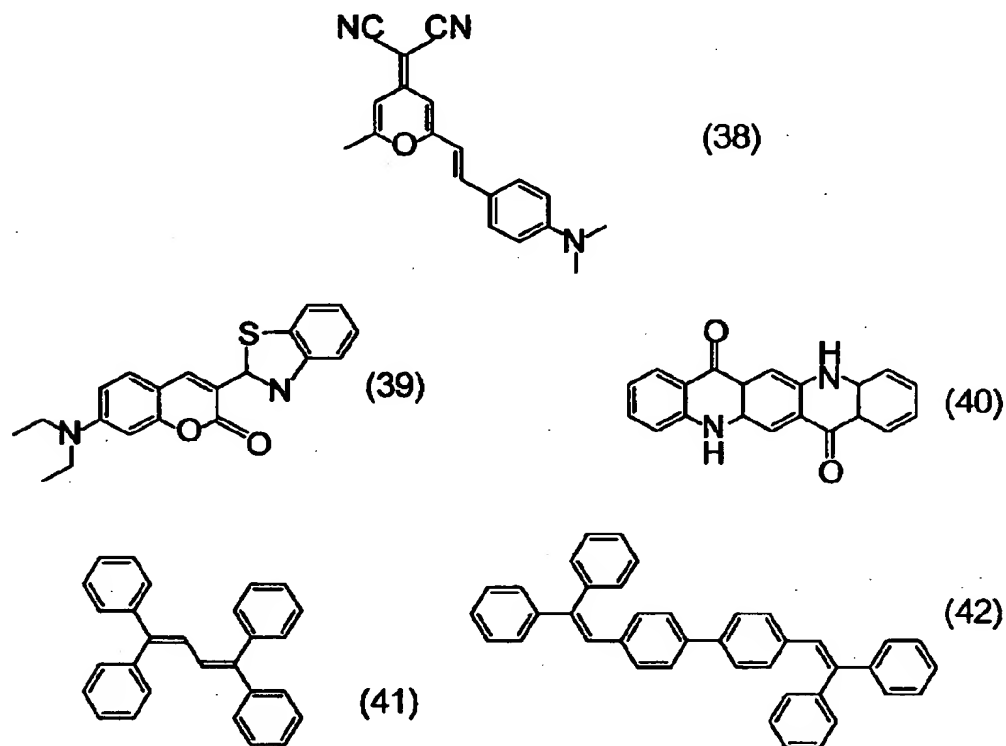


【0 0 3 3】

また、複数の有機薄膜層により発光帯域を構成する場合、本発明に用いられる一般式〔1〕で表される化合物を陽極と接する層に用い、この層と陰極の間に更に発光層を設ける事ができる。この場合、化合物（1）～（12）に示す本発明に用いられる化合物を組み合わせる複数の層とすることもできる。

また、陽極に接する層と陰極の間に、化合物（19）～（37）で示す電子輸送材料に化合物（38）～（41）を混合した発光層を挿入する、あるいは化合物（42）のような電子輸送性発光材料からなる発光層を挿入することで、複数の発光層より発光帯域を形成してもよい。

【化 2 3】



【0 0 3 4】

有機薄膜 E L 素子の陽極は、正孔を発光帯域へ注入する役割を担うものであり、4. 5 e V 以上の仕事関数を有することが効果的である。用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金 (I T O)、酸化錫 (N E S A)、金、銀、白金、銅等が適用できる。

また、陰極としては、電子輸送帯域または発光帯域に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金、アルミニウム－リチウム合金、アルミニウム－スカンジウム－リチウム合金、マグネシウム－銀合金等が使用できる。

【0 0 3 5】

本発明の有機 E L 素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピコート法による形成方法を用いることができる。本発明

の有機EL素子に用いられる、前記一般式〔1〕で示される化合物を含有する発光層、正孔輸送層、電子輸送層等の有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法（MBE法）あるいは溶媒に溶かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャストリング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機EL素子を構成する各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数nm～1μmの範囲が好ましい。

【0036】

【実施例】

以下、本発明を実施例をもとに詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されない。

〔合成例〕化合物（2）の合成

1、3、5-トリブロモベンゼンのクロロホルム溶液に硫酸を入れ、次いで硝酸を加えて50℃で5時間加熱した。反応終了後、有機層を5%炭酸カリウム水溶液で中和し、次いで水洗し、硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去して得られた白色固体をエタノールから再結晶して2、4、6-トリブロモニトロベンゼンを合成した。

次いでテトラヒドロフラン中、ニッケル触媒存在下、よう化メチルマグネシウムとの反応により4位をメチル化し、次いで塩化n-ブチルマグネシウムとの反応により2、6-ジ-n-ブチル-4-メチルニトロベンゼンを合成した。

次いで亜鉛によるニトロ基の還元反応により2、6-ジ-n-ブチル-4-メチルアニリンを合成した。

次いで銅、炭酸カリウム存在下、2、6-ジ-n-ブチル-4-メチルアニリンと4-ブロモ-4'-メチルスチルベンとの反応により4-メチルスチリル-2'-6'-ジ-n-ブチル-4'-メチルジフェニルアミンを合成した。

次いで銅、炭酸カリウム存在下、1、4-ジブロモ-2、3-ジメチルナフタレンとの反応により化合物（2）を合成した。

このようにして得られた化合物(2)を、発光層として用いた例を下記の実施例4に示す。

また、化合物(2)以外の一般式[1]で表される化合物を発光層として使用した例(実施例1~3、5~6、9~11、14~15)、正孔輸送材料との混合薄膜とし発光層として用いた例(実施例7~8)、電子輸送材料との混合薄膜とし発光層として用いた例(実施例12~13)を以下に示す。

【0037】

(実施例1)

図1に示す断面構造の有機薄膜EL素子を以下の手順で作成した。

素子は陽極/発光層/陰極により構成されている。ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が $20\Omega/\square$ になるように製膜し、陽極とした。その上に発光層として、化合物(7)を真空蒸着法にて 40nm 形成した。次に陰極としてマグネシウム-銀合金を真空蒸着法にて 200nm 形成して有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を 5V 印加したところ、 $200\text{cd}/\text{m}^2$ の赤色発光が得られた。また、最大発光効率は $0.51\text{lm}/\text{W}$ であった。

【0038】

(実施例2)

発光材料として、化合物(9)を用いる以外は実施例1と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を 5V 印加したところ、 $210\text{cd}/\text{m}^2$ の赤色発光が得られた。また、最大発光効率は $0.61\text{lm}/\text{W}$ であった。

【0039】

(実施例3)

ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が $20\Omega/\square$ になるように製膜し、陽極とした。その上に化合物(1)のクロロホルム溶液を用いたスピコート法により 40nm の発光層を形成した。次に陰極としてマグネシウム-銀合金を真空蒸着法により 200nm 形成して有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を 5V 印加したところ、 $180\text{cd}/\text{m}^2$ の青色発光が得られた。また、最大発光効率は $0.51\text{lm}/\text{W}$ であった。

【0040】

(実施例4)

実施例4に用いた素子の断面構造を図2に示す。素子は陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極により構成されている。ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が $20\Omega/\square$ になるように製膜し、陽極とした。その上に正孔輸送層として、化合物(15)を真空蒸着法にて 50nm 形成した。次に、発光層として、化合物(2)を真空蒸着法にて 40nm 形成した。次に、電子輸送層として化合物(21)を真空蒸着法にて 20nm 形成した。次に陰極としてマグネシウム-銀合金を真空蒸着法によって 200nm 形成して有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を 10V 印加したところ、 $12,000\text{cd}/\text{m}^2$ の青色発光が得られた。また、最大発光効率 $4.51\text{m}/\text{W}$ であった。

【0041】

(実施例5)

発光材料として、化合物(5)を用いる以外は実施例4と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を 10V 印加したところ、 $10,000\text{cd}/\text{m}^2$ の赤色発光が得られた。また、最大発光効率 $4.81\text{m}/\text{W}$ であった。

【0042】

(実施例6)

正孔輸送層として化合物(13)を、電子輸送層として(20)を用いる以外は実施例4と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を 10V 印加したところ、 $13,000\text{cd}/\text{m}^2$ の青色発光が得られた。また、最大発光効率 $4.51\text{m}/\text{W}$ であった。

【0043】

(実施例7)

実施例7に用いた素子の断面構造を図4に示す。素子は陽極／発光層／電子輸送層／陰極により構成されている。ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が $20\Omega/\square$ になるように製膜し、陽極とした。その上に発光層

として化合物(15)と化合物(7)を1:10の重量比で共蒸着して作製した薄膜を50nm形成した。次いで電子輸送層として化合物(21)を真空蒸着法にて50nm形成した。次に陰極としてマグネシウム-銀合金を200nm形成してEL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、5,000cd/m²の赤色発光が得られた。また、最大発光効率は2.5lm/Wであった。

【0044】

(実施例8)

化合物(7)の代わりに化合物(9)を用いる以外は実施例7と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、7200cd/m²の青色発光が得られた。また、最大発光効率は2.4lm/Wであった。

【0045】

(実施例9)

ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/□になるように製膜し、陽極とした。その上に発光層として化合物(3)を真空蒸着法で80nm形成し、その上に電子輸送層として化合物(20)を真空蒸着法にて50nm形成した。次に陰極としてマグネシウム-銀合金を200nm形成してEL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、8,000cd/m²の青色発光が得られた。また、最大発光効率は4.2lm/Wであった。

【0046】

(実施例10)

化合物(3)の代わりに化合物(5)を用いる以外は実施例9と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、9,200cd/m²の赤色発光が得られた。また、最大発光効率は2.4lm/Wであった。

【0047】

(実施例11)

化合物(3)の代わりに化合物(1)を、電子輸送層として化合物(21)を用いる以外は実施例9と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $9,200\text{ cd/m}^2$ の青色発光が得られた。また、最大発光効率 2.81 m/W であった。

【0048】

(実施例12)

実施例12に用いた素子の断面構造を図3に示す。素子は陽極/正孔輸送層/発光層/陰極により構成されている。ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が $20\Omega/\square$ になるように製膜し、陽極とした。その上に正孔輸送層として(15)を真空蒸着法にて 50 nm 形成した。次に、発光層として(23)と化合物(1)とを20:1の重量比で真空共蒸着した膜を 50 nm 形成した。次に陰極としてマグネシウム-銀合金を 200 nm 形成してEL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $5,500\text{ cd/m}^2$ の赤色発光が得られた。また、最大発光効率 2.21 m/W であった。

【0049】

(実施例13)

発光層として、化合物(23)と化合物(9)とを20:1の重量比で真空共蒸着した 50 nm の膜を用いる以外は実施例12と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $6,000\text{ cd/m}^2$ の赤色発光が得られた。また、最大発光効率 2.11 m/W であった。

【0050】

(実施例14)

ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が $20\Omega/\square$ になるように製膜し、陽極とした。その上に正孔輸送層として化合物(15)を真空蒸着法にて 50 nm 形成した。その上に発光層として化合物(7)を真空蒸着法にて 40 nm 形成し、次に陰極としてマグネシウム-銀合金を 200 nm 形成してEL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $4,000\text{ cd/m}^2$ の赤色発光が得られた。また、最大発光効率 1.31 m/W であった。

【 0 0 5 1 】

(実施例 1 5)

正孔輸送層として化合物 (1 3) を、発光層として化合物 (9) を用いる以外は実施例 1 4 と同様のを行い有機 E L 素子を作製した。この素子に直流電圧を 1 0 V 印加したところ、 $4, 100 \text{ cd/m}^2$ の赤色発光が得られた。また、最大発光効率 1.21 m/W であった。

【 0 0 5 2 】

以上、実施例 1 ~ 1 5 で得られた有機ルミネッセンス素子を、初期輝度を 100 cd/m^2 として連続駆動させたところ、全ての素子において輝度の半減寿命は 5 0 0 0 時間以上であった。

【 0 0 5 3 】

【発明の効果】

以上説明したとおり、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子においては、高輝度な E L 発光が得られ、また、発光特性の低下、寿命特性の低下が起こらない、高寿命なものである。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の一例を示す断面図である。

【図 2】 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の他の例を示す断面図である。

【図 3】 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の他の例を示す断面図である。

【図 4】 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の他の例を示す断面図である。

【符号の説明】

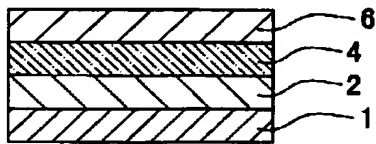
- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔輸送層
- 4 発光層

5 電子輸送層

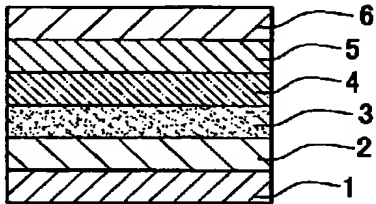
6 陰極

【書類名】 図面

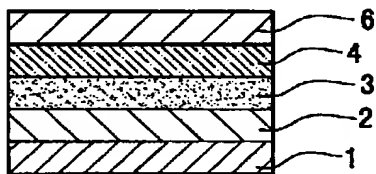
【図 1】



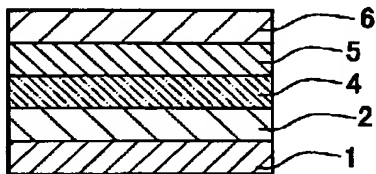
【図 2】



【図 3】



【図 4】



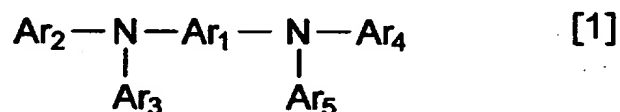
【書類名】 要約書

【要約】

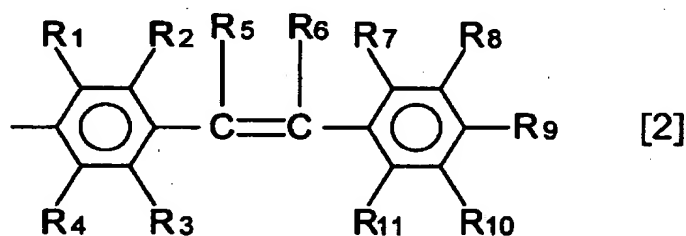
【課題】 高輝度かつ長寿命の有機 E L 素子を提供する。

【解決手段】 有機 E L 素子の構成材料として、下記一般式 [1] (式 [1] 中、 $A r_1$ は炭素数 5 ~ 4 2 の置換もしくは無置換のアリーレン基であり、 $A r_2 \sim A r_5$ はそれぞれ独立に炭素数 6 ~ 2 0 の置換もしくは無置換のアリール基であり、 $A r_2 \sim A r_5$ のうち少なくとも一つは下記一般式 [2] で表されるスチリル基を有し、これとは独立して $A r_2 \sim A r_5$ のうち少なくとも一つは炭素数 2 以上の置換もしくは無置換の飽和炭化水素基を有する。) で表される特定のビスジアリールアミノアリーレン化合物を用いる。

【化 1】



【化 2】



【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	平成 11 年 特許願 第 356686 号
受付番号	59901224868
書類名	特許願
担当官	畑 規子 2183
作成日	平成 11 年 12 月 22 日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】	000004237
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号
【氏名又は名称】	日本電気株式会社

【代理人】

申請人

【識別番号】	100108578
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	高橋 詔男

【代理人】

【識別番号】	100064908
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	志賀 正武

【選任した代理人】

【識別番号】	100101465
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	青山 正和

【選任した代理人】

【識別番号】	100108453
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ ル 志賀国際特許事務所
【氏名又は名称】	村山 靖彦

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 4 2 3 7]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 9 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号
氏 名	日本電気株式会社